第42卷 第4期
2022年8月

桂林电子科技大学学报
Journal of Guilin University of Electronic Technology

Vol. 42,No. 4
Aug. 2022

双主相 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜磁性能的微磁学模拟研究

何经纬，周　刚，饶光辉

(桂林电子科技大学 材料科学与工程学院,广西 桂林　541004)

摘　要:为了提高永磁薄膜的磁性能以及提高Ce元素的利用率,基于微磁学理论,采用OOMMF软件对双主相 $Nd_2Fe_{14}B$/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜的磁化反转过程进行了模拟,系统地研究了磁化反转过程中磁层厚度和多层膜层数对周期多层膜磁性能的影响,分析了体系的剩磁、矫顽力、磁滞回线和磁化反转过程中的能量变化以及磁体的矫顽力机制,为日后制备高含量Ce的高性能磁体提供参考。研究结果表明:当固定多层膜厚度和层数不变时,随着磁层厚度的增加,体系的矫顽力和最大磁能积均逐渐减小;周期多层膜的矫顽力机制主要由成核主导;在其他条件相同时,平行取向的周期多层膜的矫顽力和磁能积均优于垂直取向的周期多层膜;周期多层膜总厚度的增加会降低取向对矫顽力的影响。研究结果将有助于加深对双主相Nd-Fe-B/Ce-Fe-B磁体磁化反转机理的认识,为将来在实验中优化永磁薄膜的磁性能提供参考。

关键词:微磁学模拟;双主相;Nd-Fe-B/Ce-Fe-B周期多层膜;磁性能

中图分类号:TB34　　**文献标志码**:A　　**文章编号**:1673-808X(2022)04-0324-09

Micro-magnetic simulation on the magnetic properties of double-main-phase Nd-Fe-B/Ce-Fe-B periodic multilayer

HE Jingwei, ZHOU Gang, RAO Guanghui

(School of Material Science and Engineering, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

Abstract: In order to improve the magnetic properties of permanent magnetic films and increase the utilization of Ce elements, the magnetization reversal process of the dual main phase Nd2Fe14B/Ce2Fe14B periodic multilayer film has been simulated, and the influence of the thickness of the magnetic layer and the number of layers of the multilayer film on the magnetic properties of the periodic multilayer film during the magnetization reversal process has been systematically studied. The remanence, coercivity, hysteresis loop of the system and the energy change during the magnetization reversal process and the magnet are analyzed. The coercive force mechanism will provid a certain reference for the preparation of high-performance magnets with high Ce content in the future. The research results show that when the thickness of the fixed multilayer film is constant and the number of the fixed multilayer film is constant, with the increase of the thickness of the magnetic layer, the coercive force and maximum magnetic energy product of the system gradually decrease; The coercive force mechanism is mainly dominated by nucleation; when other conditions are the same, the coercivity and magnetic energy product of the parallel-oriented periodic multilayer film are better than those of the perpendicularly-oriented periodic multilayer film; the total thickness of the periodic multilayer film increases Will reduce the influence of orientation on coercivity. The research results will help to deepen understand the magnetization reversal mechanism of the dual-phase Nd-Fe-B/Ce-Fe-B magnets, and provide a certain reference for optimizing the magnetic properties of permanent magnet films in future experiments.

Key words: micro-magnetic; double main phases; Nd-Fe-B/Ce-Fe-B periodic multilayer; magnetic properties

收稿日期:2021-04-22
基金项目:国家重点基础研究发展计划(2014CB643703)
通信作者:周刚(1977—),男,副教授,博士,研究方向为微磁学模拟。E-mail:zhouguet@hotmail.com
引文格式:何经纬,周刚,饶光辉.双主相Nd-Fe-B/Ce-Fe-B周期多层膜磁性能的微磁学模拟研究[J].桂林电子科技大学学报,2022,42(4):324-332.

Nd-Fe-B 磁体因具有优异的磁性能而受到科研人员的广泛关注[1-6]。近年来,随着 $Nd_2Fe_{14}B$ 永磁体总产量不断上升,稀土金属使用不平衡的问题凸显出来。由于稀土元素多以共生的方式富集于某区域的地壳中,稀土分离企业在提取 Nd、Pr 元素时,产生了大量 La、Ce 等副产品,而 Ce 在稀土矿中的丰度远高于 Pr、Nd,Nd-Fe-B 产业的迅猛发展造成了 Ce 的大量积压,并导致环境污染等一系列问题[7]。如果能用 Ce 替代一部分 Nd,既能降低 Nd-Fe-B 磁体的成本,又能实现稀土资源的综合平衡利用,对稀土永磁产业的可持续发展具有重要意义。然而由于 $Ce_2Fe_{14}B$ 的磁晶各向异性能场只有 4.6 T,远低于 $Nd_2Fe_{14}B$ 的各向异性能场(7.5 T),且 $Ce_2Fe_{14}B$ 的理论饱和磁化强度(1.17 T)也比 $Nd_2Fe_{14}B$(1.61 T)低很多[8]。采用常规方法,用 Ce 元素部分或者全部替代 Nd-Fe-B 中的 Nd 元素,都面临着剩余磁化强度和内禀矫顽力急剧降低的问题。因此,在很长一段时间内,研究者都对含 Ce 磁体研究缺乏热情。

针对这些问题,王景代[9]提出双硬磁主相的方法,希望以此来提高 Ce 的使用规模,并减少其对磁性能的影响。双硬磁主相法尝试复合(或组合)2 种及 2 种以上不同内参数的永磁材料,利用其各自优势,制备出兼具多种单相永磁优点的复合型永磁材料。王景代通过实验证明了双主相 Nd-Ce-Fe-B 磁体的最大磁能积高于单合金 Nd-Ce-Fe-B 磁体。Liu 等[10-11]基于微磁学理论,采用数值模拟的方法,系统研究了单主相和双主相(CexNd1-x)2Fe14B 磁体的动态磁化过程,发现随着 Ce 含量的增加,矫顽力不会线性降低,而是在约 20%的取代率下表现出异常的增强,验证了双主相方法的可行性。Zhu 等[12]使用双主相法制备了 RE-Fe-B 烧结磁体,并在 Ce 含量对退磁曲线方形度和磁性能的影响方面做了深入研究和探讨,阐明了双主相合金技术生产的高性能永磁材料微结构与高矫顽力之间的关系,即当 Ce 含量占稀土金属总量的 90%时,矫顽力机制主要表现为成核机理。权其琛[13]研究了 Nd-Ce-Fe-B 合金磁性能随 Ce 添加量的变化机理,发现低 Ce 含量的 Nd-Ce-Fe-B 合金磁性能降低主要是由于内禀磁性能下降,高 Ce 含量的 Nd-Ce-Fe-B 合金磁性能降低除了受内禀磁性能影响外,还与晶界相对磁畴壁钉扎效应降低有关。孙亚超等[14]采用磁控溅射技术制备了具有永磁特征的 Nd-Ce-Fe-B 多层纳米复合薄膜,并对其进行了退火处理,发现薄膜中存在较强的交换耦合作用及较强的局部钉扎作用,这种钉扎作用在薄膜矫顽力机制中并不占支配地位。孙亚超等[15]利用直流磁控溅射技术在 Si 基底上制备了 NdFeB、CeFeB 和 NdFeB/CeFeB 薄膜,证明了通过双硬磁复合能够有效降低薄膜磁化强度对时间的依赖性,提高了其时间稳定性。杨丽丽等[16]应用微磁学理论计算了 $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe/$Nd_2Fe_{14}B$ 磁性三层膜的磁滞回线,发现当软磁层厚度小于临界尺寸时,磁滞回线都具有良好的方形度,而随着软磁层厚度的增加,软硬磁交换耦合膜的矫顽力与磁能积都逐渐下降。张军等[17]用微磁学模拟的方法对 Sm-Co/α-Fe/Sm-Co 三层膜磁的磁化反转过程进行了研究,发现在软磁层厚度较小时,体系的反转行为是单相的;随着软磁层厚度的增大,逐渐转变为两相反转行为,即软磁中心部分优先成核。张军等[18]对 Sm-Co/α-Fe 双层膜和多层膜磁的磁化反转过程进行了微磁学模拟,发现若磁体的结构不同,则磁体的磁性能和磁反转过程也会有所区别,当磁体的结构为 $Nd_2Fe_{14}B$(10 nm)/α-Fe(5 nm)/$Nd_2Fe_{14}B$(10 nm)多层梯度膜时,最大磁能积和矫顽力都大幅减小。马建春等[19]利用微磁学有限差分法模拟了 $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe 双层膜和多层梯度膜的磁化反转过程,发现若磁体的结构不同,则磁体的磁性能和磁反转过程也会有所区别,当结构最优化时,磁滞回线台阶消失,矫顽力大幅度降低。马建春等[20]针对不同结构 Sm-Co/α-Fe 薄膜体系的磁性能进行了研究,发现若磁体的结构不同,则磁体的磁性能和磁反转过程也会有所区别,当结构最优化时,最大磁能积和矫顽力达到最大值。

由于烧结磁体晶体结构及相组成的复杂性,各向异性常数不同的硬磁主相之间的作用机制及 Ce 元素对磁体主相和晶界相的影响还不完全清楚,双硬磁主相 Nd-Ce-Fe-B 烧结磁体的研究工作尚有一定困难。因此,选取结构和相组成相对简单的薄膜材料作为研究对象,采用微磁学模拟的方法,研究了垂直取向和平行取向的双主相 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 磁性周期多层膜的磁滞回线和矫顽力机制,以期为将来在实验中优化永磁薄膜的磁性能提供参考。

1 计算方法

在模型中,$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层交替排布,一个周期包括 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层各一层。三维直角坐标系原点取在底面顶点处。$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层的易磁化轴和外加磁场皆沿 Z 轴正方向或 Y 轴正方向。易磁化轴和外加磁场皆沿 Z 轴正方向,称作垂直取向;易磁化轴和外加磁场皆沿 Y 轴正方向,称作水平取向。图 1 为垂直取向周期为 2 的双

主相 $Nd_2Fe_{14}B$/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜模型。磁层厚度由 L 表示，下标 Nd、Ce 分别表示 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层，L_{Nd}、L_{Ce} 分别为 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层的厚度。

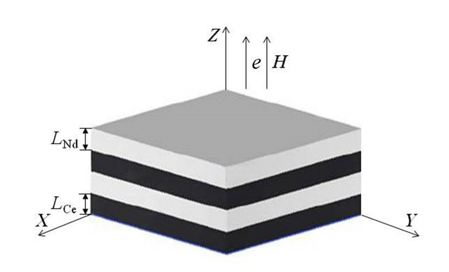


图 1 垂直取向周期为 2 的双主相 $Nd_2Fe_{14}B$/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜模型

在 OOMMF 微磁学三维模拟软件中，磁矩的变化过程遵循 Landau-Lifshitz-Gilbert 动力方程：

$$\frac{d\boldsymbol{M}}{dt}=-|\overline{\gamma}|\boldsymbol{M}\times\boldsymbol{H}_{eff}-\frac{|\overline{\gamma}|\alpha}{\boldsymbol{M}_S}\times\boldsymbol{H}_{eff}, \quad (1)$$

其中：$\boldsymbol{M}$ 为某点的磁化强度矢量；$\boldsymbol{H}_{eff}$ 为有效场；$\overline{\gamma}$ 为 Landau-Lifshitz 旋磁比率；α 为阻尼系数。为了既不影响计算进度又能缩短计算时间，将 α 的值设为 0.5。有效场可定义为

$$\boldsymbol{H}_{eff}=-\upsilon_0^{-1}\frac{\partial\boldsymbol{E}}{\partial\boldsymbol{M}}。 \quad (2)$$

根据 Brown 理论，能量密度 E 可表示为[21-22]

$$E=A\left[\frac{\nabla\boldsymbol{M}}{\boldsymbol{M}_S}\right]^2-K\frac{(\boldsymbol{M}_n)^2}{\boldsymbol{M}_S{}^2}-\upsilon_0\boldsymbol{M}\times\boldsymbol{H}-\frac{1}{2}\boldsymbol{\upsilon}_0\boldsymbol{H}_d\boldsymbol{M}, \quad (3)$$

其中：A 为交换耦合常数；K 为磁晶各项异性常数；$\boldsymbol{H}$、$\boldsymbol{H}_d$ 分别为外场和静磁相互作用场；$\boldsymbol{M}_S$ 为饱和磁化强度。式(3)右边的 4 项分别表示交换能、磁晶各项异性能、塞曼能以及退磁能。

周期膜的长、宽皆设为 300 nm，每个网格的长、宽、高分别设为 3、3、0.5 nm。外加磁场从 6 T 以每步减少 100 mT 变化到−6 T。$Nd_2Fe_{14}B$、$Ce_2Fe_{14}B$ 的磁性能参数如表 1 所示。$Nd_2Fe_{14}B$、$Ce_2Fe_{14}B$ 层之间的交换耦合系数 $A_{interface}$ 的值设为 6.35×10^{-12} J/m，L_{Nd}、L_{Ce} 根据每次计算的条件而变化。

表 1 $Nd_2Fe_{14}B$ 和 $Ce_2Fe_{14}B$ 的磁性能参数

材料	M_S/(MA·m^{-1})	K/(kJ·m^{-3})	A/(10^{-12}J·m^{-1})
$Nd_2Fe_{14}B$	1.28	4.3	7.7
$Ce_2Fe_{14}B$	0.93	1.5	5.0

2 结果与讨论

2.1 垂直取向下双主相周期多层膜的磁性能

2.1.1 周期数不变时磁层厚度对体系磁性能的影响

固定多层膜周期数为 4 层，保持 $Nd_2Fe_{14}B$ 层与 $Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度比为 1∶1，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层易磁化轴 e 和外加磁场场 $\boldsymbol{H}$ 都垂直于膜面，保持其他参数不变，改变磁层厚度，模拟计算该多层膜磁性能的变化情况，得到磁滞回线，如图 2 所示。

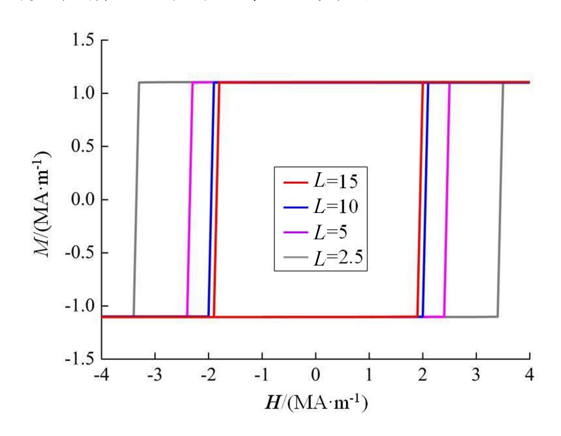
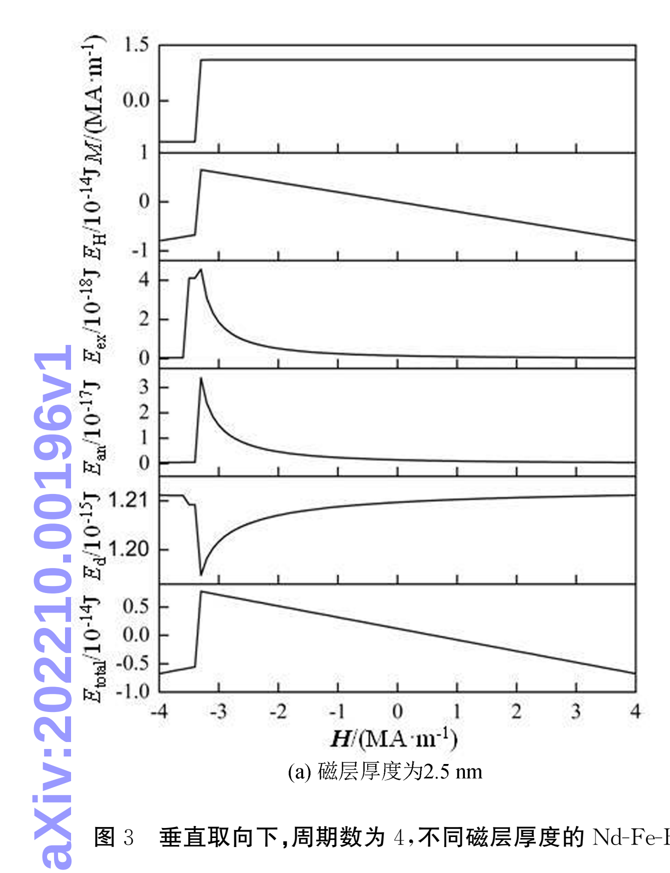


图 2 垂直取向下周期数固定为 4 的磁层厚度不同的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系的磁滞回线

从图 2 可看出，周期数固定为 4 的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 多层膜在不同磁层厚度下的磁滞回线均为方形，而随着 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度的逐渐增大，体系的矫顽力($\boldsymbol{H}'$)与最大磁能积均逐渐减小，但剩磁的变化并不显著；$\boldsymbol{H}'$ 由磁层厚度为 2.5 nm 时的 3.3 MA•m^{-1} 下降到磁层厚度为 15 nm 时的 1.8 MA•m^{-1}；最大磁能积由磁层厚度为 2.5 nm 时的 3.63 kJ•m^{-3} 下降到磁层厚度为 15 nm 时的 1.98 kJ•m^{-3}。这是因为随着磁层厚度的逐渐增大，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层间交换耦合作用逐渐减弱，导致矫顽力和最大磁能积降低。

图 3 为垂直取向下，周期数为 4，不同磁层厚度的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化。当 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系处于正饱和状态时，交换作用能(E_{ex})和磁晶各向异性能(E_{an})都接近于零。当外加场减小，且磁矩仍在正向时，塞曼能(E_H)随外加磁场的减小而缓慢增大。当外加场进一步减小时，磁矩方向逐渐偏离外加磁场方向，E_{ex} 和 E_{an} 开始逐渐增大，而退磁能(E_d)随之减小。达到成核场时，所有能量因大部分磁矩的反转而剧烈变化，随后在磁矩完全反转后，系

统的总能量降到最低。结合图 2,该体系的磁滞回线都具有良好的方形度,故而可认为该体系的矫顽力机制由成核主导。从图 3 可看出,在较小外场下,磁层厚度为 15 nm 的周期多层膜的交换能开始增大,这说明其交换耦合作用较弱,内部磁矩反转也较容易,导致其磁矩更易形核,且易扩展,进而导致其矫顽力较小。因此,磁层厚度为 2.5 nm 的周期多层膜比磁层厚度为 15 nm 的周期多层膜的矫顽力要高很多,且磁能积更大。



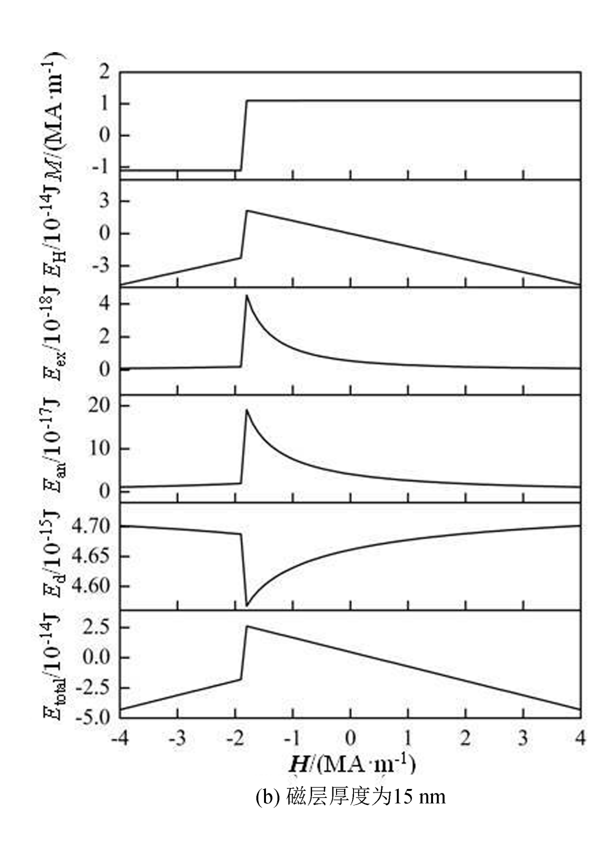


图 3 垂直取向下,周期数为 4,不同磁层厚度的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化

2.1.2 体系总厚度不变时,周期数对体系磁性能的影响

模拟中,固定体系总厚度为 40 nm,保持 $Nd_2Fe_{14}B$ 层与 $Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度比为 1∶1,$Nd_2Fe_{14}B$ 层和 $Ce_2Fe_{14}B$ 层易磁化轴 $\boldsymbol{e}$ 和外加磁场场 H 都垂直于膜面。在保持其他参数不变的情况下,通过改变磁层的周期数,对该体系磁性能的变化情况进行模拟计算,图 4 为该体系的磁滞回线。

从图 4 可看出,总厚度为 40 nm 的 $Nd_2Fe_{14}B$/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系在不同周期数下的磁滞回线均为方形,体系的矫顽力和最大磁能积随体系周期数 n 的增大而逐渐增大,这是因为在体系总厚度保持不变的前提下,周期数 n 的增大等价于磁层厚度的减小,当周期数 n 取 1 时,$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层层间交换耦合作用最弱。随着周期数 n 的逐渐增大,磁层厚度逐渐减小,$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层层间交换耦合作用逐渐增强,导致矫顽力和最大磁能积逐渐提高。

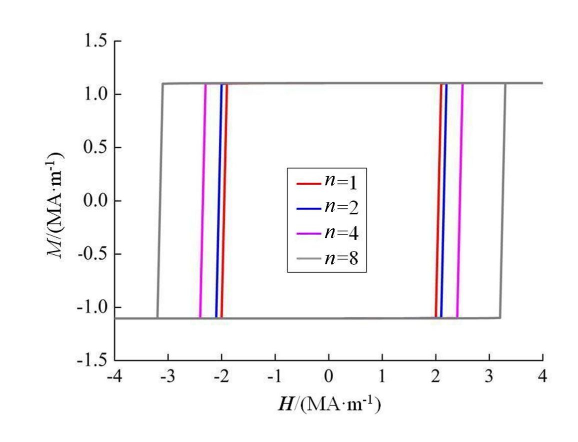
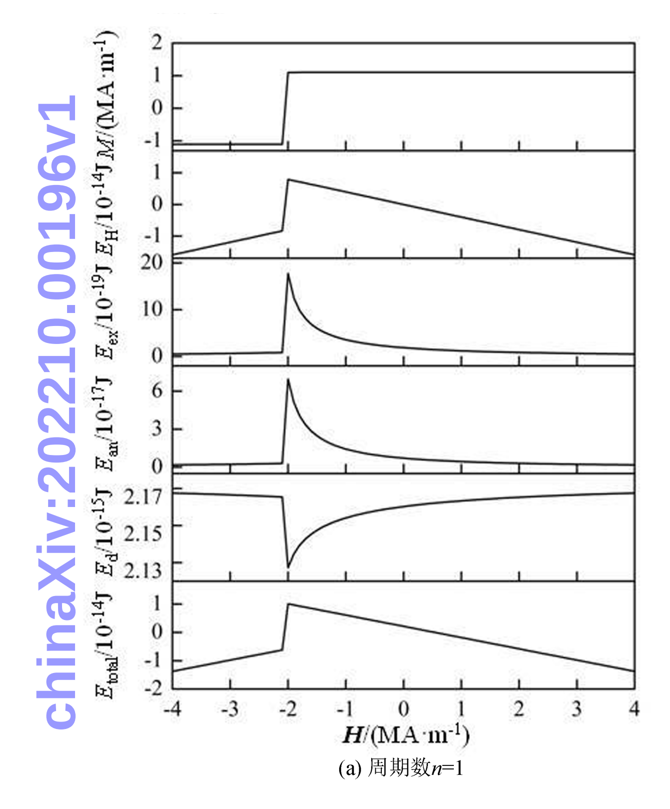


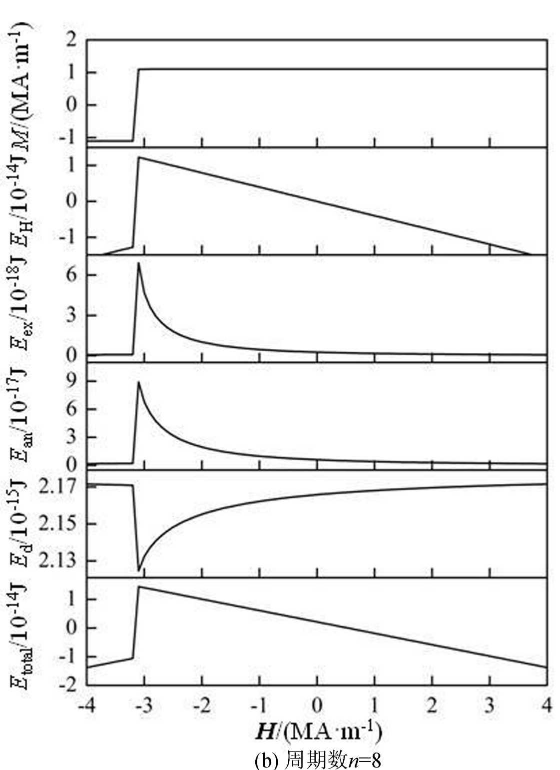
图 4 垂直取向下,总厚度为 40 nm,不同周期数的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系的磁滞回线

图 5 为总厚度为 40 nm,周期数分别为 1、8 的 $Nd_2Fe_{14}B$/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化。从图 5 可看出,在不同厚度下,磁化反转过程的能量变化趋势相同,达到成核场时,所有能量因大部分磁矩的反转而剧烈变化,随后在磁矩

完全反转后，系统的总能量降到最低。结合图 4，该体系的磁滞回线都具有良好的方形度，故而可认为该体系的矫顽力机制由成核主导。从图 5 可看出，相较于 $n=1$ 的周期多层膜体系，$n=8$ 的周期多层膜需要更强的外场才能使交换能增加，这说明在总厚度相同的情况下，周期多层膜体系的周期数越多，交换耦合作用越强烈，磁矩反转越难，导致其磁矩更难形核且难扩展，进而导致其矫顽力更大。从多层膜磁层结构来看，$n=8$ 的周期多层膜体系在 $Nd_2Fe_{14}B$ 和 $Ce_2Fe_{14}B$ 两相之间存在 15 个接触面，远多于 $n=1$ 的周期多层膜体系的接触面数，因此 $n=8$ 的周期多层膜拥有更为强烈的两相间交换耦合作用，进而导致其拥有更大的矫顽力。在磁矩反转的扩展过程中，这 15 个界面上都会发生钉扎作用。钉扎面数远比 $n=1$ 的周期多层膜体系多，所以总厚度相同的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系的矫顽力和磁能积都会随周期数的增加而增加。2 种体系反转磁化过程的能量变化趋势类似，两者的磁晶 E_{an} 和 E_d 数值较接近，但交换能相差明显。$n=8$ 的周期多层膜的交换能明显大于 $n=1$ 的周期多层膜，更大的交换能会使得周期多层膜的更难形核、扩展，并完成磁矩反转，进而导致体系矫顽力增加。



(a) 周期数n=1



(b) 周期数n=8

图 5　垂直取向下总厚度固定为 40 nm 周期数不同的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化

2.2　平行取向下双主相周期多层膜的磁性能

2.2.1　周期数不变时磁层厚度对体系磁性能的影响

固定体系周期数为 4，保持 $Nd_2Fe_{14}B$ 层与 $Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度比为 1∶1，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层易磁化轴 e 和外加磁场场 $\boldsymbol{H}$ 都平行于膜面，保持其他参数不变，通过改变磁层的厚度，对多层膜磁性能的变化情况进行模拟计算。图 6 为该体系的磁滞回线。

从图 6 可看出，平行取向下周期数为 4 的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 体系在不同磁层厚度下的磁滞回线均为方形。随着 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层的厚度逐渐增大，体系的矫顽力（$\boldsymbol{H}'$）与最大磁能积

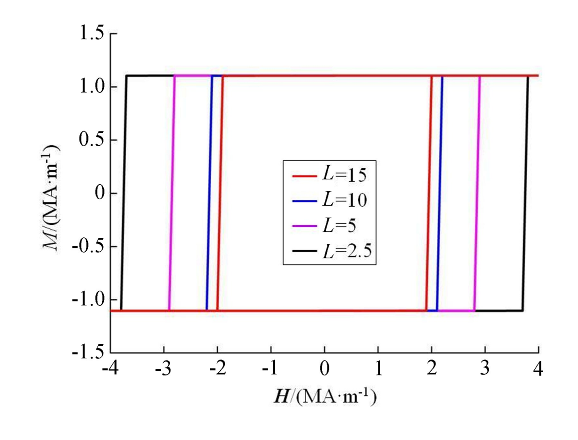
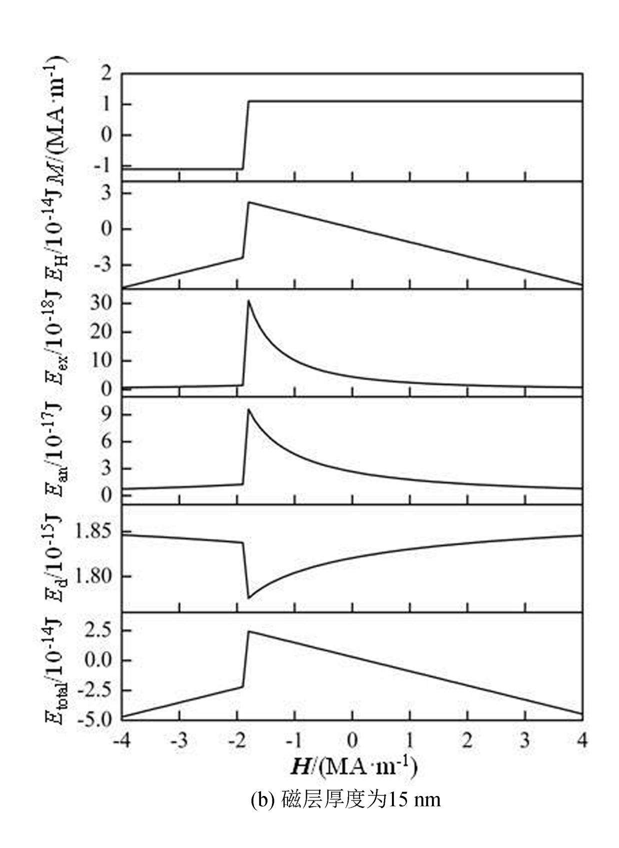


图 6　平行取向下，周期数为 4，不同磁层厚度的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系的磁滞回线

BH_{max} 均逐渐减小，这是因为当 $Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度较薄时，不同磁层之间交换耦合作用比较强烈，而随着磁层厚度的逐渐增大，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层间交换耦合作用逐渐减弱，导致其磁矩更易形核，且易扩展，进而导致 $\boldsymbol{H}'$ 和 BH_{max} 降低。

图 7 为平行取向下，周期数为 4，不同磁层厚度的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化。在图 7 中，$Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系处于正饱和状态时，E_{ex} 和 E_{an} 接近于零。当外加场减小且磁矩仍在正向时，E_H 随外加磁场的减小而缓慢增大，当外加场进一步减小时，磁矩方向逐渐偏离外加磁场方向，E_{ex} 和 E_{an} 开始逐渐增大，而 E_d 随之减小。达到成核场时，所有的能量因大部分磁矩的反转而剧烈变化，随后在磁矩完全反转后，系统的总能量降到最低。结合图 6，该体系的磁滞回线都具有良好的方形度，故而可认为该体系的矫顽力机制由成核主导。从图 7 还可看出，在较小的外场下，磁层厚度为 15 nm 的周期多层膜的交换能开始增大，这说明其交换耦合作用比较弱，内部磁矩反转也较容易，意味着其磁矩更易形核，且易扩展，进而导致其矫顽力较小。因此，磁层厚度为 2.5 nm 的周期多层膜比磁层厚度为 15 nm 的周期多层膜的矫顽力要高很多，且磁能积更大。

(a) 磁层厚度为2.5 nm



(b) 磁层厚度为15 nm

图 7 平行取向下，周期数为 4，不同磁层厚度的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化

2.2.2 总厚度不变时周期数对体系磁性能的影响

固定体系总厚度为 40 nm，保持 $Nd_2Fe_{14}B$ 层与 $Ce_2Fe_{14}B$ 层厚度比为 1∶1，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层易磁化轴 e 和外加磁场场 $\boldsymbol{H}$ 都平行于膜面，保持其他参数不变，通过改变磁层的厚度，对多层膜磁性能的变化情况进行模拟计算，图 8 为该体系的磁滞回线。

从图 8 可看出，平行取向下总厚度固定为 40 nm 的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系在不同周期数下的磁滞回线均为方形。体系的矫顽力和最大磁能积随体系周期数 n 的增大而逐渐增大，这是因为

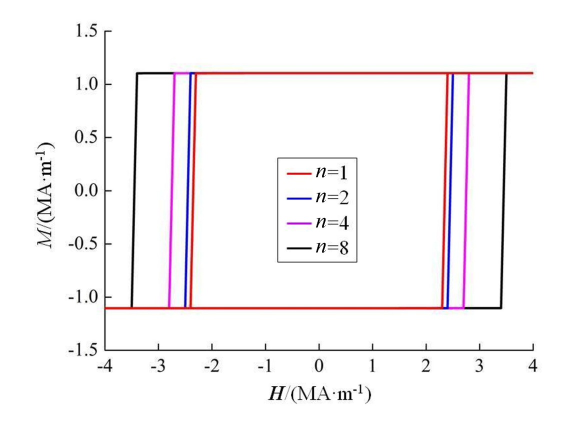
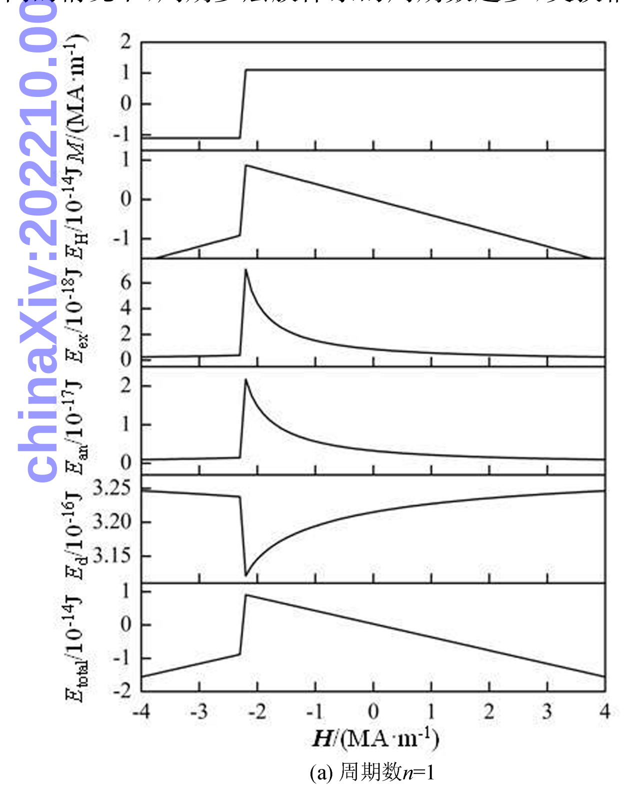


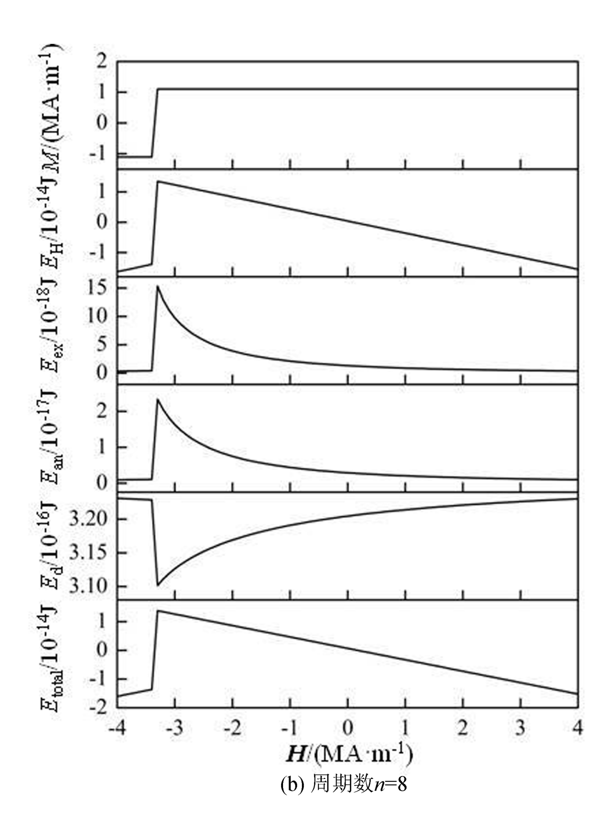
图 8 平行取向下总厚度固定为 40 nm 周期数不同的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系的磁滞回线

在体系总厚度保持不变的前提下周期数 n 的增大等价于磁层厚度的减小，当周期数 n 取 1 时，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层层间交换耦合作用最弱。随着周期数 n 的逐渐增大，磁层厚度逐渐减小，$Nd_2Fe_{14}B$ 层、$Ce_2Fe_{14}B$ 层层间交换耦合作用逐渐增强，导致 $\boldsymbol{H}'$ 和最大 BH_{max} 逐渐提高。

图 9 为总厚度固定为 40 nm，周期数分别为 1、8 的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化。从图 9 可看出，在不同厚度下，磁化反转过程的能量变化趋势相同，达到成核场时，所有能量因大部分磁矩的反转而剧烈变化，随后在磁矩完全反转后，系统的总能量降到最低。结合图 8，该体系的磁滞回线都具有良好的方形度，故而可认为该体系的矫顽力机制由成核主导。从图 9 可看出，相较于 $n=1$ 的周期多层膜体系，$n=8$ 的周期多层膜需要更强的外场才能使交换能增加，这说明在总厚度相同的情况下，周期多层膜体系的周期数越多，交换耦合作用越强烈，磁矩反转越难，导致其磁矩更难形核且难扩展，进而导致其矫顽力更大。从多层膜磁层结构来看，$n=8$ 的周期多层膜体系在 $Nd_2Fe_{14}B$ 和 $Ce_2Fe_{14}B$ 两相之间存在 15 个接触面，远多于 $n=1$ 的周期多层膜体系的接触面数，因此 $n=8$ 的周期多层膜拥有更为强烈的两相间交换耦合作用，进而导致其拥有更大的 $\boldsymbol{H}'$。在磁矩反转的扩展过程中，这 15 个界面上都会发生钉扎作用。钉扎面数远比 $n=1$ 的周期多层膜体系要多，所以总厚度相同的 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜体系的矫顽力和磁能积都会随着周期数的增加而增加。2 种体系反转磁化过程的能量变化趋势类似，两者的磁晶各向异性能和退磁能接近，但是交换能数值相差明显。$n=8$ 的周期多层膜的交换能明显大于 $n=1$ 的周期多层膜；更大的交换能会使得周期多层膜的更难形核、扩展并完成磁矩反转，进而导致体系矫顽力增加。



(a) 周期数n=1



(b) 周期数n=8

图 9　平行取向下，总厚度为 40 nm，不同周期数的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的能量变化

2.3　易磁化轴与外场取向对双主相 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 磁性周期多层膜磁性能的影响

图 10(a)为取向不同、磁层厚度不同、周期数相同的周期多层膜在磁化反转过程中的矫顽力对比；图 10(b)为取向不同、周期数不同、总厚度相同的周期多层膜在磁化反转过程中的矫顽力对比。从图 10 可看出，在其他条件相同时，平行取向的双主相 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 磁性周期多层膜的矫顽力要优于垂直取向的双主相 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 磁性周期多层膜。这是由于平行取向的周期多层膜中的 E_{ex} 与 E_d 和明显大于垂直取向的周期多层膜。这说明平行取向的周期多层膜拥有更为强烈的交换耦合作用，导致平行取向的周期多层膜的磁矩更难形核，并难扩展，进而导

致平行取向的周期多层膜拥有更大的 $\boldsymbol{H}'$。进一步分析图 10 可知,在周期数相同的情况下,随着磁层厚度的增大,不同取向的周期多层膜的 $\boldsymbol{H}'$逐渐趋于一致;而在总厚度相同,周期数不同的情况下,不同取向的周期多层膜之间的 $\boldsymbol{H}'$差距较为稳定。这说明周期多层膜总厚度的增加会降低取向对 $\boldsymbol{H}'$的影响。

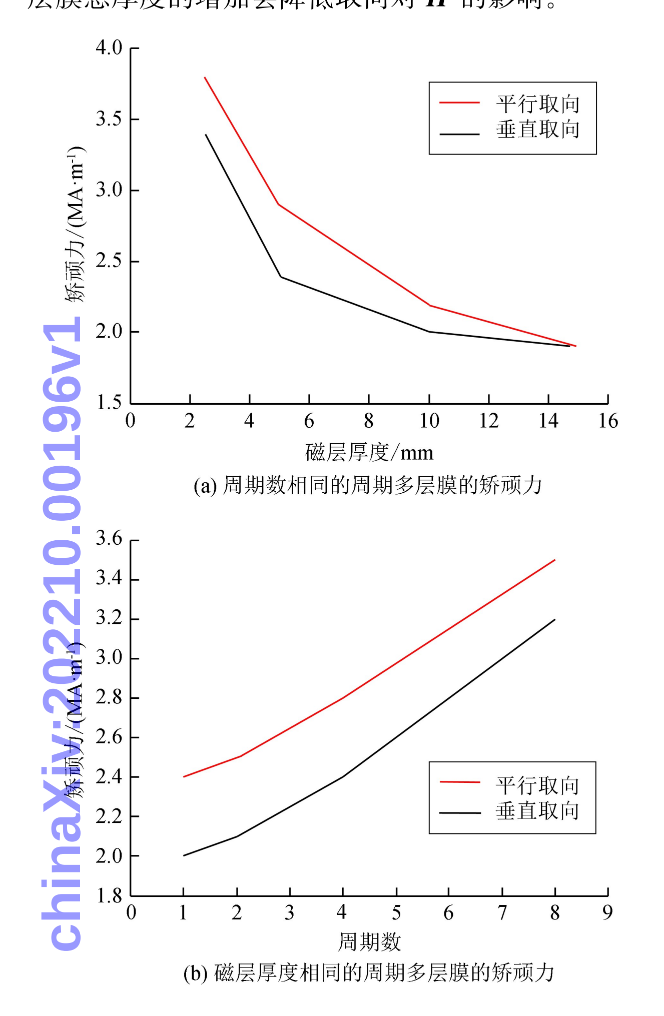


图 10　易磁化轴与外场取向不同的 Nd-Fe-B/Ce-Fe-B 周期多层膜体系在磁化反转过程中的矫顽力

3　结束语

基于微磁学理论,用微磁学模拟软件(OOMMF)对双主相 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜进行了系统的研究。发现双主相 Nd_2Fe14B/$Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜的矫顽力机制主要由成核主导。随着磁层厚度的逐渐增加,Nd-Fe-B 层、Ce-Fe-B 层间交换耦合作用逐渐减弱,导致 $\boldsymbol{H}'$和 BH_{max} 降低。在其他条件相同时,平行取向的周期多层膜性能要优于垂直取向的周期多层膜。周期多层膜总厚度的增加会降低取向对 $\boldsymbol{H}'$ 的影响。因此,在制备双主相 $Nd_2Fe_{14}B/Ce_2Fe_{14}B$ 周期多层膜时,应结合所需的磁性能要求合理选取 $Nd_2Fe_{14}B$ 层和 $Ce_2Fe_{14}B$ 层的周期、厚度与取向。

参考文献:

[1] SAGAWA M, FUJIMURAL S, TOGAWA N, et al. New material for permanent magnets on a base of Nd and Fe (invited)[J]. Journal of Applied Physics, 1984, 55(6): 2083-2087.

[2] SATO T, OKA N, OHSUNA T, et al. Enhancement of coercivity for Nd-Fe-B thin films by the infiltration of Nd-Cu alloy cap layer[J]. Journal of Applied Physics, 2011, 110(2): 2083-264.

[3] WANG H J, LI A H, ZHU M G, et al. Sintered Nd-Fe-B magnets with improved impact stability[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2006, 307(2): 268-272.

[4] FENG W C, GAO R W, HAN G B, et al. Exchange-coupling interaction and effective anisotropy of NdFeB nanocomposite permanent magnetic materials[J]. Acta Physica Sinica, 2004, 53(9): 3171.

[5] DAI C L, JIAN X L, ZHAO Y Y, et al. Magnetic cloak made of NdFeB permanent magnetic material[J]. Acta Physica Sinica, 2016, 65(23): 103-108.

[6] AKDOGAN O, DOBRYNIN A, ROY D L, et al. Superferrimagnetism in hard Nd-Fe-B thick films, an original concept for coercivity enhancement[J]. Journal of Applied Physics, 2014, 115(17): 821.

[7] 李安华,李卫,张月明,等. (Ce,RE)-Fe-B 永磁材料的研究开发新进展[J]. 中国稀土学报, 2016, 34(6): 715-725.

[8] HERBST J F. R2Fe14B materials: intrinsic properties and technological aspects[J]. Review of Modern Physics, 1991, 63(4): 819-898.

[9] 王景代. 双主相合金法制备烧结(Nd,RE)-Fe-B 磁体研究[D]. 北京:钢铁研究总院, 2012: 10-13.

[10] LIU D, ZHAO T Y, LI R, et al. Micromagnetic simulation of the influence of grain boundary on cerium substituted Nd-Fe-B magnets[J]. AIP Advances, 2017, 7(5): 056201.

[11] LIU D, MA T Y, WANG L C, et al. Computational analysis of microstructure-coercivity relation in multi-main-phase Nd-Ce-Fe-B magnets[J]. Journal of Physics D Applied Physics, 2019, 52(13): 1-20.

[12] ZHU M G, LI W, WANG J D, et al. Influence of Ce content on the rectangularity of demagnetization curves and magnetic properties of Re-Fe-B magnets sintered by double main phase alloy method[J]. IEEE Transactions on Magnetics, 2013, 50(1): 1-4.

[13] 权其琛. Nd-Ce-Fe-B 快淬合金的磁性能及矫顽力机制研究[D]. 赣州:江西理工大学, 2018: 6-12.

[14] 孙亚超,朱明刚,石晓宁,等. Nd-Ce-Fe-B 纳米复合薄膜的磁性及交换耦合作用[J]. 物理学报,2017(15):253-260.
[15] 孙亚超,朱明刚,韩瑞,等. 各向异性稀土永磁薄膜的磁黏滞性[J]. 金属学报,2018,54(3):457-462.
[16] 杨丽丽,张敏刚,赵毅朝,等. $Nd_2Fe_{14}B$/α-Fe/$Nd_2Fe_{14}B$ 磁性三层膜的微磁学模拟[J]. 稀土,2011,32(4):50-54.
[17] 张军,王炎,邓晨华,等. Sm-Co/α-Fe/Sm-Co 三层膜磁反转过程的微磁学模拟[J]. 磁性材料及器件,2014,45(3):13-16.
[18] 张军,卫英慧,姜姗姗,等. Sm-Co/α-Fe 双层膜和多层膜磁反转的微磁学模拟[J]. 磁性材料及器件,2015,46(1):14-16.
[19] 马建春,张军,薛玫. $Nd_2Fe_{(14)}B$/α-Fe 双层膜和多层梯度膜磁反转过程的微磁学模拟[J]. 磁性材料及器件,2016,47(2):1-3.
[20] 张军,马建春,武国兴. 不同结构 Sm-Co/α-Fe 薄膜体系磁性能的研究[J]. 真空科学与技术学报,2017,37(3):245-249.
[21] HERZER G. Nanocrystalline soft magnetic materials [J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1993,112(1-3):258-262.
[22] KRPNMULLER H, FISCHER R, SEEGER M, et al. Micromagnetism and microstructure of hard magnetic materials[J]. Journal of Physics D Applied Physics, 1999,29(9):2274.

编辑:张所滨